

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号  
特開2002-134135  
(P2002-134135A)

(43) 公開日 平成14年5月10日 (2002.5.10)

(51) Int. Cl.  
H 0 1 M 8/02

識別記号

8/10

F I  
H 0 1 M 8/02

8/10

キーワード(参考)

Y 5 H 0 2 6  
P

審査請求 未請求 請求項の数12 O L (全 10 頁)

(21) 出願番号 特願2000-320766(P2000-320766)

(22) 出願日 平成12年10月20日 (2000.10.20)

(71) 出願人 000002185

ソニー株式会社

東京都品川区北品川6丁目7番35号

(72) 発明者 田中 浩一

東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニ

ー株式会社内

(74) 代理人 100038580

弁理士 秋山 敏 (外1名)

Pターム(参考) 5H026 AA06 CC03 CC04 CC05 EE02

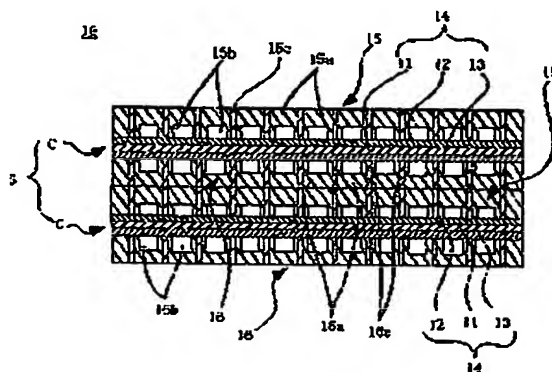
EE05 EE18

(64) 【発明の名称】 燃料電池用セパレータ

(57) 【要約】

【課題】 本発明の目的は、成形性に優れ、生産性の良く、コストの低減が可能な燃料電池用セパレータを提供する。

【解決手段】 電解質膜11を燃料側の電極膜12と空気側の電極膜13とで挟持した発電素子14を挟持する燃料電池用セパレータ15、16であって、樹脂材料からなる本体15a、16aの少なくとも厚さ方向に、電気的導通を確保可能な導電性材料15cが埋設されている。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 電解質膜を燃料側の電極膜と空気側の電極膜とで挟持した発電素子を挟持する燃料電池用セパレータであって、樹脂材料からなる本体の少なくとも厚さ方向に、電気的導通を確保可能な導電性材料が埋設されたことを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項2】 前記樹脂材料は実質的に水素ガスを透過しない材料からなることを特徴とする請求項1記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項3】 前記導電性材料はカーボンまたは金属からなることを特徴とする請求項1記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項4】 前記金属は耐酸性の材料からなることを特徴とする請求項3記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項5】 前記導電性材料は、セパレータ本体を成形加工した後に埋設されてなることを特徴とする請求項1記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項6】 前記導電性材料は、セパレータ本体の成形加工と同時に一体成形により埋設されてなることを特徴とする請求項1記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項7】 前記導電性材料は、ロッド状、ワイヤ状、リボン状のいずれかとして形成されてなることを特徴とする請求項1記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項8】 電解質膜を燃料側の電極膜と空気側の電極膜とで挟持した発電素子を挟持する燃料電池用セパレータであって、該セパレータは樹脂材料からなる本体の一部に、電気的導通を確保可能な導電性材料が設けられ、少なくとも前記電極膜と接触する面の一部または全面に、電気的導通を確保可能な導電性の皮膜が形成されてなることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項9】 前記導電性の皮膜はカーボンまたは金属からなることを特徴とする請求項8記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項10】 前記金属は耐酸性の材料からなることを特徴とする請求項9記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項11】 前記電解質膜はプロトン伝導体からなることを特徴とする請求項1または8記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項12】 前記プロトン伝導体からなる電解質膜は、プロトン解離性の基を備えてなることを特徴とする請求項11記載の燃料電池用セパレータ。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は燃料電池用セパレータに係り、特に、低コストで供給可能な燃料電池用セパレータに関する。

【0002】

【従来の技術】 燃料電池は、一般的に、発電素子とセパレータとからなるセルをを構成要素としている。発電素子は、真ん中にプロトンを経由して水素極から空気極へ移動させ

るための電解質膜と、この電解質膜の両側に付された電極膜とから構成され、一番外側にセパレータが配置される。

【0003】 一般的なセパレータの形状を図10に示す。図示されているように、セパレータ101の表面には、凹凸が形成されている。凹部102は、燃料ガスまたは酸化剤ガスの通路とされるものであり、凸部103は、触媒電極表面に密着して集電部となるように構成されている。

10 【0004】 上記セルは、単一の構成では、工業的用途に活用できるような十分な電流電圧を発生しないので、通常は、このセルを1つの構成単位として多段に積層することによりスタックを形成し、所望の電流電圧が確保される。

【0005】 上記のように、セルを積層してスタックを形成するとき、各セルで発生した電力が、セルの積層方向に流れるようにすれば、最終的にスタックの一端側に設けられた出力端子から電力を取り出すことが可能となる。そして、各セルの外側に位置するセパレータが導電性を有していれば、各セル間は電気的に接続され、各セルで発生した電力がセルの積層方向に流れ、スタックの一端側で電力を取り出すことが可能となる。

【0006】 このため、一般に、セパレータは導電性を有する素材から形成されている。そして、導電性を有するセパレータとしては、カーボンを圧縮してガス不透過としたガス不透過カーボンや、炭素繊維強化プラスチック(CFRP)或いはアモルファスカーボンなどが素材として使用されていた。

【0007】

30 【発明が解決しようとする課題】 上記したカーボンを圧縮してガス不透過としたガス不透過カーボンや、炭素繊維強化プラスチック(CFRP)或いはアモルファスカーボンなどが素材は高価であり、セルのコストが上昇し、結果的に燃料電池のコストが高くなるという問題があった。そこで、コストを低減させるために、金属板の全体に電気伝導性の良好な緻密性カーボングラファイトをコーティングして、導電性を有する素材の使用量を少なくした技術が知られている。

40 【0008】 しかし、上記した金属板の全体に電気伝導性の良好な緻密性カーボングラファイトをコーティングする技術では、カーボングラファイトのコーティングをセパレータの全体に施す必要があり、生産性や成形性が悪く、結果としてコスト低減を図れなくなるという不都合があった。

【0009】 本発明の目的は、成形性に優れ、生産性の良く、コストの低減が可能な燃料電池用セパレータを提供することにある。

【0010】

50 【課題を解決するための手段】 上記課題は、本発明に係る燃料電池用セパレータによれば、電解質膜を燃料側の

電極膜と空気側の電極膜とで挟持した発電素子を挟持する燃料電池用セパレータであって、樹脂材料からなる本体の少なくとも厚さ方向に、電気的導通を確保可能な導電性材料が埋設した構成とする、ことにより解決される。

【0011】このように、本発明の燃料電池用セパレータは、主に導電性を持たない樹脂から形成されているので、成形性の良好な樹脂を選択が可能であり、成形に特別な技術を要求せずに成形できるなど、成形が簡単である。また、安価な樹脂材料により、所望形状の成形が可能であり、低価格で高い生産性で製造することが可能である。また、樹脂に埋め込まれた導電性部材により、セル間の導電性を確保することが可能となる。

【0012】なお、より具体的には、前記樹脂材料は、供給された燃料としての水素ガスが漏れないように、実質的に水素ガスを透過しない材料から形成される。また、前記導電性材料は、電気的導通を確保するために、カーボンまたは金属から形成される。このとき、耐酸性の金属を用いると好適である。

【0013】導電性材料は、セパレータ本体を成形加工した後に埋設される。或いは、セパレータ本体の成形加工と同時に一体成形により埋設される。

【0014】導電性材料は、電極膜と導通する構成であればどのような形状に形成されていても良いが、ロッド状に形成すると、セパレータ本体への取付が容易となり好適である。或いは、ワイヤ状またはリボン状とすると、セパレータ本体と一体成形する場合、セパレータ本体への取付強度を確保することが可能であり、好適である。

【0015】上記課題は、本発明の請求項8に係る燃料電池用セパレータによれば、電解質膜を燃料側の電極膜と空気側の電極膜とで挟持した発電素子を挟持する燃料電池用セパレータであって、該セパレータは樹脂材料からなる本体の一部に、電気的導通を確保可能な導電性材料が設けられ、少なくとも前記電極膜と接触する面の一部または全面に、電気的導通を確保可能な導電性の皮膜が形成されてなる、ことにより解決される。

【0016】このように、導電性の皮膜は、電極膜表面に密着する部分にのみ形成された構成としても、導電性の皮膜と発電素子を介して効率よく且つ連続的に集電可能となり、さらに各セルで発生した電力は導電性材料により接続される。

【0017】より具体的には、導電性の皮膜はカーボンまたは金属から形成される。このとき、耐酸性の材料からなる金属を用いると好適である。

【0018】また、発電素子を構成する電解質膜について、プロトン伝導体からなる電解質膜を用いると好適である。プロトン伝導体からなる電解質膜は、プロトン解離性の基を備えたものを用いると好適である。

【0019】上記のように、プロトン解離性の基を備え

たものをプロトン伝導体とした電解質膜を使用することにより、セパレータに、水素ガスを加湿するための加湿手段との接続を図るための加工や工夫をする必要なくなり、シンプルでコンパクトな構成とすることが可能となる。また、水素を加湿しない構成とすることが可能であるため、従来の燃料電池のように多量の水が発生しないので、大容量の保水手段や水の排出を考慮したセパレータとすることも不要となる。

【0020】

10 【発明の実施の形態】以下、本発明の一実施の形態を図面に基づいて説明する。なお、以下に説明する部材、配置等は本発明を限定するものでなく、本発明の趣旨の範囲内で種々改変することができるものである。

【0021】図1乃至図9は本実施の形態を示すものであり、図1は本発明の燃料電池用セパレータを示す説明図、図2は本発明の燃料電池用セパレータを用いた燃料電池の一部を示す説明図、図3はフラーレン分子を主要構成要素としてプロトン解離性の基を備えた一例としてのポリ水酸化フラーレンの構造図、図4はフラーレン分子を主要構成要素としてプロトン解離性の基を備えた一例を示す模式図、図5は炭素クラスターの例を示す説明図、図6は開放端を有する炭素クラスターの例を示す説明図、図7はダイヤモンド構造を持つ炭素クラスターの例を示す説明図、図8は各種のクラスターが結合した炭素クラスターの例を示す説明図、図9は自己加湿型電解質膜の説明図である。なお、本明細書において、「プロトン(H<sup>+</sup>)の解離」とは、「電離によりプロトンが〈官能基から〉離れること」を意味し、「プロトン解離性の基」とは、「プロトンが電離により離脱し得る官能基」を意味する。

【0022】燃料電池10は、図2に示すように、所定の出力を得るためにセルCを連続させたスタックとして形成されている。セルCは、図2に示すように、電解質膜11を、燃料側の電極膜12と空気側の電極膜13とで挟持した発電素子と、この発電素子を両側から挟持するセパレータ15、16とから構成されている。このセルCを積層させてスタックSが形成されている。なおスタックSは、図示しない板体により積層された複数のセルCを加圧挟持している。

40 【0023】本例において、空気側の電極膜12側に配設されるセパレータを、空気側のセパレータ15、燃料側の電極膜13側に配設されるセパレータを、燃料側のセパレータ16として説明する。

【0024】空気側のセパレータ15及び燃料側のセパレータ16は、発電素子14へのガスの供給路となるものである。また、空気側の電極膜12と、燃料側の電極膜13に対して電気導電性を持ち、集電機能を有するとともに、酸化剤ガスとしての空気と、燃料ガスとしての水素ガスとの混合を防止する仕切機能を有している。

50 【0025】空気側のセパレータ15は、図1に示すよ

うに、本体15aに通路15bが形成され、通路15bの両側に導電性材料15cが埋設して形成されている。燃料側のセパレータ16も、前記空気側のセパレータ15と同様の構成であり、本体16aに通路16が形成され、通路16bの両側に導電性材料16cが埋設して形成されている。

【0026】空気側のセパレータ15の通路15bには、空気側の電極膜12に供給される酸化剤ガスとしての空気が通過するように構成されている。また、燃料側のセパレータ16の通路16bには、燃料電池に供給される燃料ガスとしての水素ガスが通過するように構成されている。

【0027】次に、本例のセパレータを形成する材料について説明する。空気側のセパレータ15の本体15a及び燃料側のセパレータ16の本体16aを構成する樹脂材料は、実質的に、水素ガスを透過しない材料から構成されている。

【0028】上記樹脂材料としては、絶縁性のある材料、耐熱性のある材料、成形加工が容易な材料などが好ましく、具体的には、ポリプロピレン（PP）、ポリ塩化ビニル（PVC）などを挙げることができるが、これらの材料に限定されるものでないことは勿論である。

【0029】導電性材料15c、16cは、それぞれ、電極膜表面に密着状態になるように配設され、発電部を構成する。導電性材料15c、16cは、発電素子14を介して連続的に接続されるように構成されている。

【0030】導電性材料15c、16cは、カーボンまたは金属から形成されている。導電性材料は、本体成形時に、本体と一体に成形しても良く、或いは、本体を成形するときに、導電性材料を配置する配置部を設けて成形し、本体成形後に導電性材料を取り付ける構成としても良い。

【0031】なお、本体成形後に導電性材料を取り付けるときには、本体と導電性材料との間の気密性が保たれるようにする。このため、本体または導電性材料に接合剤を塗布して、導電性材料を配設する構成としても良い。

【0032】なお、導電性材料として、金属を用いる場合は、耐酸性の材料を使用する。耐酸性の金属材料として、具体的には、金、白金、パラジウム等があるが、加工性を考慮すると金等が好ましい。また、導電性材料は、厚み方向に使用するだけであるので、従来に比して少量の使用で済み、全体のコストは著しく低減する。

【0033】導電性材料は、電極膜と導通する構成であればどのような形状に形成されていても良いが、例えば、ロッド、ワイヤまたはリボン状に形成される。ロッド状に形成すると、本体に後付で導電性材料を取り付けるときに、本体に形成された導電性材料配置部に取り付けやすくなり好適である。

【0034】また、導電性材料をワイヤ状またはリボン

状に形成する場合は、所定の導電性が得られるように、複数の導電性材料を束ねるようにして使用する。このように、ワイヤ状またはリボン状の導電性材料を用いることにより、本体と導電性材料を一体成形するときに、導電性材料と本体との高い密着性が得られ好適である。またロッド状、ワイヤ状、リボン状は、全て同じものを用いる必要はなく、複合的に用いることも可能である。これにより、最適な形状を適宜選択することが可能となる。

10 【0035】なお、上記のように、本体の通路両側に導電性材料を配設する構成の他、通路両側の凸部に、導電性の皮膜を形成した構成としても良い。すなわち、通路両側の凸部頂部は電極膜と接触する面であり、この面の少なくとも一部に、導電性の皮膜を形成する。

【0036】なお、前記皮膜を凸部の頂部だけでなく、空気側のセパレータ15と燃料側のセパレータ16との接触面に設けても良い。これにより、より高い電気伝導性を確保することが可能となる。

20 【0037】導電性の皮膜は、カーボングラファイト、クロム、白金族金属またはその酸化物、導電性ポリマー等を用い、スパッタリングにより、通路両側の凸部に皮膜が形成される。

【0038】なお、導電性の皮膜の形成はスパッタリングだけでなく、各種の成膜手段を利用することが可能であり、例えば、蒸着、メッキやペースト塗布の厚膜成形プロセスを用いることもできる。

30 【0039】以上の構成において、反応ガスが燃料電池スタック構造の各セルCに導入されると、電解質膜11において酸素と水素が反応し、電解質膜中に水素イオンが流れ電力が発生する。

【0040】そして、電気化学反応で発生した電力は、セパレータを介して、セルCの隔壁方向に流れる。このようにして、最終的に、スタックの一旦側に設けられた一対の出力端子（図示せず）から電力を取り出すことができる。

40 【0041】なお、本実施例の燃料電池10において、電解質膜として、プロトン伝導体からなる電解質膜11を使用すると好適である。プロトン伝導体としては、パーフルオロスルホン酸樹脂（ナフィオン（Nafion (R)）：Du pont社製）や、フラーレン誘導体等がある。以下、ここでは、通称「フラーノール（Fulleranol）」と称される水分を介在させないプロトン伝導体からなる電解質膜11について説明する。

【0042】プロトン伝導体からなる電解質膜11として、ポリ水酸化フラーレンは、図3に示すように、フラーレンに複数の水酸基を付加した構造を持ったものの総称であり、通称「フラーノール（Fulleranol）」と呼ばれている。当然のことながら、フラーノールは1992年にChangらによって最初に合成例が報告された(Chang, L. Y.; Smrczewski, J. W.; Hsu, C. S.; Chowd

hury, S. K.; Cameron, S.; Creegan, K. J. *Chem. Soc., Chem. Commun.* 1992, 1791). 以来、一定量以上の水酸基を導入したフラレノールは、特に水溶性である特徴が目され、主にバイオ関連の技術分野で研究されてきた。

【0043】フラレノールは、図4(A)で概略図示するように凝集体とし、近接し合ったフラレノール分子(図中、○はフラレノール分子を示す。)の水酸基同士に相互作用が生じるようにする。この凝集体はマクロな集合体として高いプロトン伝導特性(換言すれば、フラレノール分子のフェノール性水酸基からのH<sup>+</sup>の解離性)を発揮する。

【0044】プロトン伝導体からなる電解質膜は、上記フラレノール以外に、たとえば複数の-O-SO<sub>3</sub>H基をもつフラレノールの凝集体をプロトン伝導体として用いるのもよい。OH基がO-SO<sub>3</sub>H基と置き換わった図4(B)に示すようなポリ水酸化フラレノール、すなわち硫酸水素エステル化フラレノールは、やはりChiangらによって1994年に報告されている(Chiang, L. Y.; Wang, L. Y.; Smrcewski, J. W.; Soled, S.; Cameron, S. J. *Org. Chem.* 1994, 59, 3960)。硫酸水素エステル化されたフラレノールには、一つの分子内にO-SO<sub>3</sub>H基のみを含むものもあるし、あるいはこの基と水酸基をそれぞれ複数、もたせたものでもよい。

【0045】上述したフラレノール誘導体を多数凝集させた時、それがバルクとして示すプロトン伝導性は、分子内に元々含まれる大量の水酸基やO-SO<sub>3</sub>H基に由来するプロトンが移動に直接関わるため、雰囲気から水蒸気分子などを起源とする水素、プロトンを取り込む必要はなく、また、外部からの水分の供給、とりわけ外気より水分等を吸収する必要もなく、雰囲気に対する制約はない。また、これらの誘導体分子の基体となっているフラレノールは、特に求電子性の性質を持ち、このことが酸度の高いO-SO<sub>3</sub>H基のみならず、水酸基等においても水素イオンの電離の促進に大きく寄与していると考えられる。

【0046】また、一つのフラレノール分子中にかなり多くの水酸基およびO-SO<sub>3</sub>H基等を導入することができるため、伝導の関与するプロトンの伝導体体積あたりの数密度が非常に多くなる。

【0047】本例のプロトン伝導体は、その殆どが、フラレノールの炭素原子で構成されているため、重量が軽く、変質もし難く、また汚染物質も含まれていない。フラレノールの製造コストも急激に低下しつつある。資源的、環境的、経済的にみてフラレノールは他のどの材料にもまして、理想に近い炭素系材料であると考えられる。

【0048】更に、プロトン解離性の基は、前述した水酸基やO-SO<sub>3</sub>H基に限定する必要はない。即ち、この解離性の基は、式-XHで表され、Xは2価の結合手段を有する任意の原子もしくは原子団であればよい。更に

は、この基は、式-OH又は-YOHで表わされ、Yは2価の結合手を有する任意の原子もしくは原子団であればよい。

【0049】具体的には、プロトン解離性の基としては、前記-OH、-OSO<sub>3</sub>H以外に-COOH、-SO<sub>3</sub>H、-OPO(OH)<sub>2</sub>のいずれかが好ましい。

【0050】更に、本例では、フラレノール分子を構成する炭素原子に、プロトン解離性の基とともに、電子吸引基、たとえば、ニトロ基、カルボニル基、カルボキシ基、ニトリル基、ハロゲン化アルキル基、ハロゲン原子(フッ素、塩素など)などが導入されていることが好ましい。図4(C)に、-OHの外にZを導入したフラレノール分子を示す。このZは、具体的には、-NO<sub>2</sub>、-CN、-F、-Cl、-COOR、-CHO、-COR、-CF<sub>3</sub>、-SO<sub>2</sub>CF<sub>3</sub>などである(ここでRはアルキル基を表わす)。このように電子吸引基が併存していると、その電子吸引効果のために、上記プロトン解離性の基からプロトンが解離し易くなる。

【0051】但し、フラレノール分子に導入するプロトン解離性の基の数は、フラレノール分子を構成する炭素数の範囲内で任意でよいが、望ましくは5個以上とするのがよい。なお、フラレノールのπ電子性を残し、有効な電子吸引力を出すためには、上記基の数は、フラレノールを構成する炭素数の半分以上が好ましい。

【0052】プロトン伝導体に用いるフラレノール誘導体を合成するには、フラレノール分子の粉末に対し、たとえば酸処理や加水分解等の公知の処理を適宜組み合わせることで、フラレノール分子の構成炭素原子に所望のプロトン解離性の基を導入すればよい。

【0053】より具体的に述べるならば、ポリ水酸化フラレノールの合成は、文献(Chiang, L. Y.; Wang, L. Y.; Smrcewski, J. W.; Soled, S.; Cameron, S. J. *Org. Chem.* 1994, 59, 3960)を参考にしておこなった。C<sub>7</sub>O<sub>2</sub>を約15%含むC<sub>7</sub>O<sub>2</sub>/C<sub>7</sub>O<sub>2</sub>フラレノール混合物の粉末2gを発煙硫酸30ml中に投じ、窒素雰囲気中で60℃に保ちながら3日間攪拌した。得られた反応物を、氷浴内で冷やした無水ジエチルエーテル中に少しずつ投下し、その沈澱物を遠心分離で分別し、さらにジエチルエーテルで3回、およびジエチルエーテルとアセトニトリルの2:1混合液で2回洗浄したあと、40℃にて減圧中で乾燥させた。さらに、この乾燥物を60mlのイオン交換水中に入れ、85℃で窒素によるバブリングを行いながら10時間攪拌した。反応生成物は遠心分離によって沈澱物を分離し、この沈澱物をさらに純水で数回洗浄し、遠心分離を繰り返した後に、40℃で減圧乾燥した。このようにして得られた茶色の粉末のFT-IR測定を行ったところ、上記文献に示されているC<sub>7</sub>O<sub>2</sub>(OH)<sub>2</sub>のIRスペクトルとはほぼ一致し、この粉末が目的物質であるポリ水酸化フラレノールと確認された。

【0054】またポリ水酸化フラーレン凝集ペレットの製造は、次に、このポリ水酸化フラーレンの粉末90mgをとり、直径15mmの円形ペレット状になるように一方方向へのプレスを行った。この時のプレス圧は約7トン/cm<sup>2</sup>であった。その結果、このポリ水酸化フラーレンの粉末は、バインダー樹脂等を一切含まないにも関わらず成形性に優れており、容易にペレット化することができた。そのペレットは厚みが約300ミクロンである。

【0055】ポリ水酸化フラーレン硫酸水素エステル（全エステル化）の合成も、同様に前記の文献を参考にしておこなった。ポリ水酸化フラーレンの粉末1mgを60mlの発煙硫酸中に投下し、室温にて窒素雰囲気下で3日間攪拌した。得られた反応物を、氷浴内で冷やした無水ジエチルエーテル中に少しずつ投下し、その沈澱物を遠心分離で分別し、さらにジエチルエーテルで3回、およびジエチルエーテルとアセトニトリルの2:1混合液で2回洗浄した後、40℃にて減圧下で乾燥させた。このようにして得られた粉末のT<sub>F</sub>-IR測定を行ったところ、前記文献中に示されている、全ての水酸基が硫酸水素エステル化されたもののIRスペクトルとほぼ一致し、この粉末が目的物質であると、確認できた。

【0056】また、ポリ水酸化フラーレン硫酸水素エステル凝集ペレットの製造は、ポリ水酸化フラーレン硫酸水素エステルの粉末70mgをとり、直径15mmの円形ペレット状になるように一方方向へのプレスを行った。この時のプレス圧は約7トン/cm<sup>2</sup>であった。その結果、この粉末はバインダー樹脂等を一切含まないにも関わらず、成形性に優れており、容易にペレット化することができた。このペレットは厚みが約300ミクロンである。

【0057】さらに、ポリ水酸化フラーレン硫酸水素エステル（部分エステル化）の合成は、C<sub>1</sub>を約15%含むC<sub>0</sub>/C<sub>1</sub>フラーレン混合物の粉末2gを発煙硫酸30ml中に投じ、窒素の雰囲気中にて、60℃に保ちながら3日間攪拌した。得られた反応物を、氷浴内で冷やしたジエチルエーテル中に少しずつ投下した。ただし、この場合のジエチルエーテルは脱水処理を行っていないものを用いた。得られた沈澱物を遠心分離で分別し、さらにジエチルエーテルで3回、およびジエチルエーテルとアセトニトリルの2:1混合液で2回洗浄した後、40℃にて減圧下で乾燥させた。このようにして得られた粉末のF<sub>T</sub>-IR測定を行ったところ、前記文献中に示されている、部分的に水酸基とOSO<sub>3</sub>H基を含むフラーレン誘導体のIRスペクトルとほぼ一致し、この粉末が目的物質であると、確認できた。

【0058】さらにまた、ポリ水酸化フラーレン硫酸水素エステル凝集ペレットの製造は、一部が硫酸水素エステル化されたポリ水酸化フラーレンの粉末80mgをとり、直径15mmの円形ペレット状になるように一方

向へのプレスを行った。この時のプレス圧は約7トン/cm<sup>2</sup>であった。その結果、この粉末はバインダー樹脂等を一切含まないにも関わらず成形性に優れており、容易にペレット化することができた。このペレットは厚みが約300ミクロンであった。

【0059】なお、上記の実施の形態では、プロトン伝導膜としては、ポリ水酸化フラーレンでできた膜を用いたが、プロトン伝導膜はこれに限定されるものではない。ポリ水酸化フラーレンは、フラーレン分子を母体とし、その構成炭素分子に水酸基を導入したものであるが、母体としてはフラーレン分子に限らず炭素を主成分とする炭素質材料であればよい。

【0060】この炭素質材料には、炭素原子が、炭素-炭素間結合の種類を問わず、数個から数百個結合して形成されている集合体である炭素クラスターや、チューブ状炭素質（通称カーボンナノチューブ）が含まれてよい。

【0061】前者の炭素クラスターには、図9で示されるような、炭素原子が多数個集合してなる、球体又は長球、又はこれらに類似する閉じた面構造を有する種々の炭素クラスターがある。また、図10で示されるような、それらの炭素クラスターの球構造の一部が欠損し、構造中に開放構造を有する炭素クラスター、図11で示すような、大部分の炭素原子がSP<sup>3</sup>結合したダイヤモンド構造を持つ炭素クラスター、更には図12で示すような、これらのクラスターどうしが種々に結合した炭素クラスターが含まれていてよい。

【0062】またこの種の母体に導入する基としては水酸基に限らず、-XH、より好ましくは-YOHで表されるプロトン解離性の基であればよい。ここでX及びYは2価の結合手を有する任意の原子若しくは原子団であり、Hは水素原子、Oは酸素原子である。具体的には、前記-OH以外に、硫酸水素エステル基-OSO<sub>3</sub>H、カルボキシ基-COOH、他に-SO<sub>3</sub>H、-OPO(OH)<sub>2</sub>のいずれかであることが好ましい。

【0063】また、ゾルゲル法により作成したプロトン（水素イオン）の高伝導性ガラスであってもよい。この高伝導性ガラスは、例えば、リン酸-ケイ酸塩（P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-SiO<sub>2</sub>）系ガラスであり、金属アルコキッド原料を加水分解し、ゲルを作製、500-800度Cで加熱しガラスとして作成している。このガラスには2ナノメートル程度の微細孔があり、そこに水分が吸着され、プロトンの移動が促進されるものである。

【0064】さらに、有機無機ハイブリッドイオン交換膜であってもよい。これは、ポリエチレンオキサイド（PEO）やポリプロピレンオキサイド（PPO）、ポリテトラメチレンオキサイド（PTMO）などとシリカが分子レベルで結合した複合膜であり、モノデシルフォスフェート（MDP）や1、2-タンゲストリン酸（PWA）などをプロトン伝導性供与剤としてドーブシ

10

20

30

40

50



たものである。

【0065】また、自己加湿型電解質膜であってもよい。この膜は、例えば図13で示すように、膜中に極微量の白金超微粒子触媒と酸化物( $\text{TiO}_2 \cdot \text{SiO}_2$ )超微粒子を高分散させている。クロスオーバーしてくる水素と酸素を逆用して白金触媒上で水を生成させ、その生成水を酸化物超微粒子に吸着保水させることにより、膜を内部から加湿して含水率を高く保つものである。そして、粒径1~2nm極微量の白金超微粒子(0.09mg/cm<sup>2</sup>)と粒径5nmの $\text{TiO}_2$ 超微粒子(乾燥Nafion重量の3%)を高分散したPt-TiO<sub>2</sub>分散膜を電解質に用いると、完全に外部無加湿の状態でも、きわめて安定で高性能(0.4~0.6Vで約0.6W/cm<sup>2</sup>)な電池運転が可能になる。上記のいずれの変形例によっても、プロトンの伝導に加湿が不要であり、本発明における効果には変わりはない。

【0066】以上のように、電解質膜として、水分を存在させないプロトン伝導体からなる電解質膜11を使用すると、水素ガスの加湿が不要であり、加湿器を設ける必要がなく、加湿器のための設置スペースを設けることがないため、セパレータを複雑な形状とする必要がなく、燃料電池をコンパクトな構成とすることが可能である。

【0067】

【発明の効果】以上のように、本発明の燃料電池用セパレータは、主に導電性を持たない樹脂から形成されているので、成形性の良好な樹脂を選択が可能であり、成形に特別な技術を要求せずに成形できるなど、成形が簡単である。また、安価な樹脂材料により、所望形状の成形が可能であり、低価格で高い生産性で製造することが可能である。また、樹脂に埋め込まれた導電性部材により、セル間の導電性を確保することが可能となる。この導電性材料は、使用量が少ないため、従来に比して、燃料電池用セパレータのコストは著しく低下する。導電性材料は、電極膜と導通する構成であればどのような形状に形成されていても良いが、ロッド状に形成すると、セパレータ本体への取付が容易となり好適である。或いは、ワイヤ状またはリボン状とすると、セパレータ本体と一体成形する場合、セパレータ本体への取付強度を確保することが可能であり、好適である。

【0068】また、本発明の燃料電池用セパレータを樹脂材料からなる本体で形成し、この一部に、電気的導通を確保可能な導電性材料が設け、少なくとも電極膜と接触する面の一部または全面に、電気的導通を確保可能な導電性の皮膜を形成することにより、導電性の皮膜と発電素子を介して効率よく且つ連続的に集電可能となり、さらに各セルで発生した電力は導電性材料により接続される。このように、導電性の皮膜は、電極膜表面に密着

する部分にのみ形成された構成としても、導電性の皮膜と発電素子を介して効率よく且つ連続的に集電可能となり、さらに各セルで発生した電力は導電性材料により接続される。

【0069】また、フラーレン分子を主要構成要素としてプロトン解離性の基を備えたものをプロトン伝導体とした電解質膜を使用することにより、セパレータに、水素ガスを加湿するための加湿手段との連携を図るための加工や工夫をする必要なくなり、シンプルでコンパクトな構成とすることが可能となる。また、水素を加湿しない構成とすることが可能であるため、従来の燃料電池のように多量の水が発生しないので、大容量の保水手段や水の排出を考慮したセパレータとすることも不要となる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の燃料電池用セパレータを示す説明図である。

【図2】本発明の燃料電池用セパレータを用いた燃料電池の一部を示す説明図である。

20 【図3】フラーレン分子を主要構成要素としてプロトン解離性の基を備えた一例としてのポリ水酸化フラーレンの構造図である。

【図4】フラーレン分子を主要構成要素としてプロトン解離性の基を備えた一例を示す模式図である。

【図5】炭素クラスターの例を示す説明図である。

【図6】開放端を有する炭素クラスターの例を示す説明図である。

【図7】ダイヤモンド構造を持つ炭素クラスターの例を示す説明図である。

30 【図8】各種のクラスターが結合した炭素クラスターの例を示す説明図である。

【図9】自己加湿型電解質膜の説明図である。

【図10】従来例を示す説明図である。

【符号の説明】

10 燃料電池

11 電解質膜

12 燃料側の電極膜

13 空気側の電極膜

14 発電素子

40 15 燃料側のセパレータ

15a 本体

15b 通路

15c 導電性材料

16 空気側のセパレータ

16a 本体

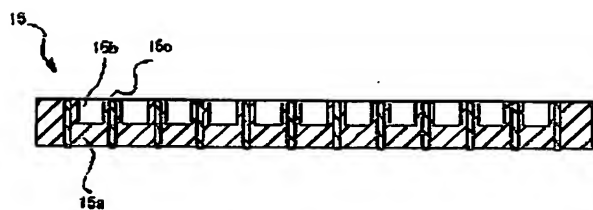
16b 通路

16c 導電性材料

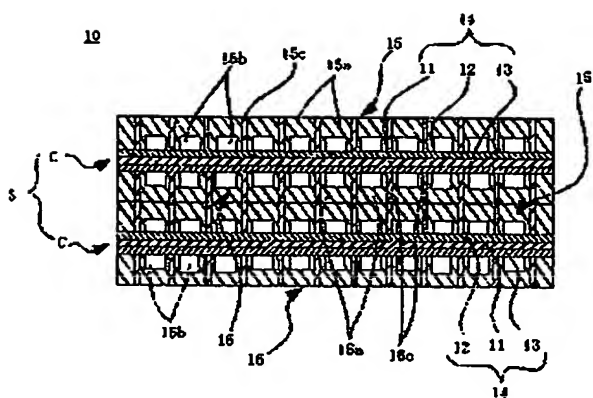
C セル

S スタック

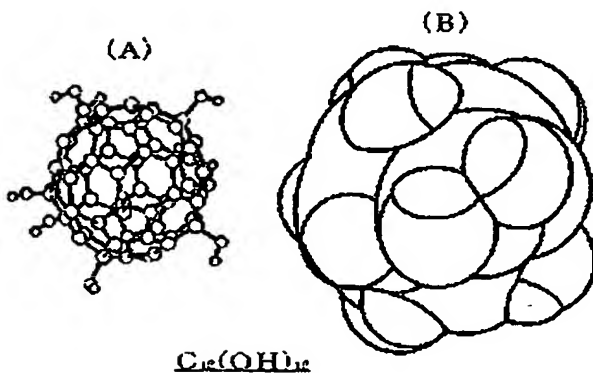
【図1】



【図2】



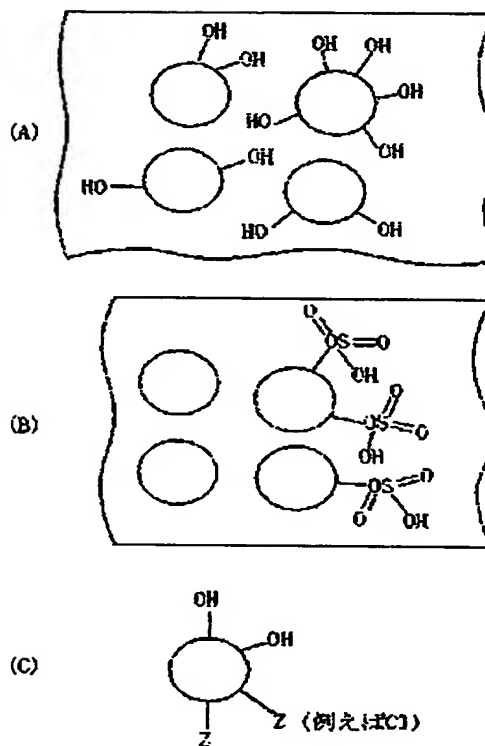
【図3】



【図10】

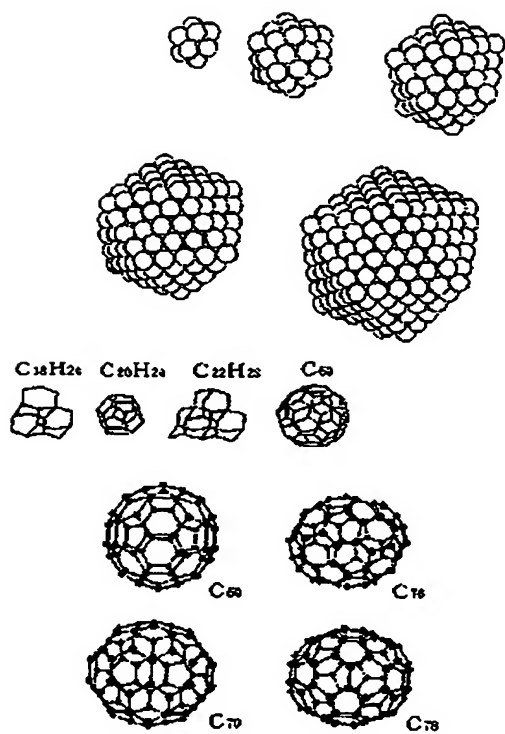


【図4】

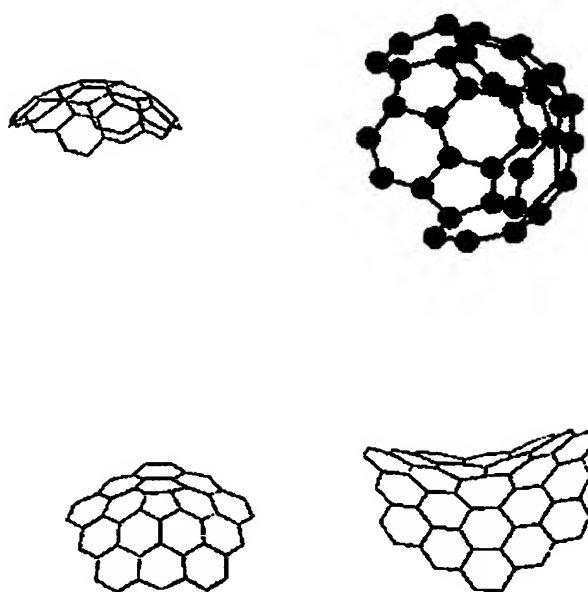




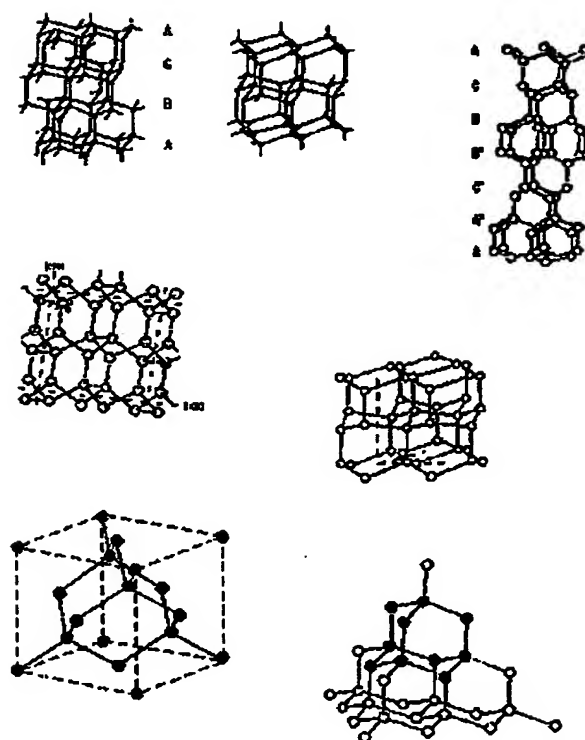
【図5】



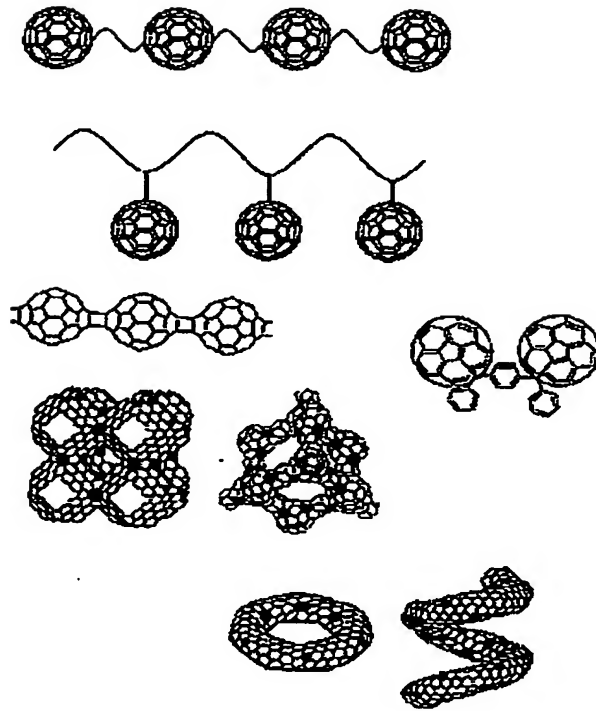
【図6】



【図7】



【図8】



【図9】

